

542105

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 7 月 29 日 (29.07.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/063142 A1

(51) 国際特許分類:
211/58, H05B 33/14, 33/22

C07C 211/54,

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/000119

(22) 国際出願日: 2004 年 1 月 9 日 (09.01.2004)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2003-007762 2003 年 1 月 16 日 (16.01.2003) JP

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 川村 久幸 (KAWA-MURA, Hisayuki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地 Chiba (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(74) 代理人: 大谷 保, 外 (OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 番 2 号 ブリヂストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: AROMATIC AMINE DERIVATIVE AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(54) 発明の名称: 芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) Abstract: A novel aromatic amine derivative having an asymmetric structure; and an organic electroluminescence element having a cathode, an anode and, sandwiched between the electrodes, one or plural organic thin film layers at least containing a luminescent layer, wherein at least one of said organic thin film layers comprises the above aromatic amine derivative as itself or a component of a mixture. The novel aromatic amine derivative has a molecular structure making the compound less susceptible to crystallization, which results in the improvement of the yield in the production of an organic EL element.

(57) 要約: 非対称な構造を有する新規な芳香族アミン誘導体、並びに陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも 1 層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であり、分子が結晶化しにくく、有機 EL 素子を製造する際の歩留りが向上する芳香族アミン誘導体及び有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

WO 2004/063142 A1

明 細 書

芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

本発明は、新規な芳香族アミン誘導体及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、さらに詳しくは、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する新規な芳香族アミン誘導体及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

背景技術

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下エレクトロルミネッセンスをELと略記することがある）は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告（C. W. Tang, S. A. Vanslyke, アプライドフィジックスレターズ(Applied Physics Letters), 51巻、913頁、1987年等）がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス（8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム）を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と

電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

通常高温環境下で有機EL素子を駆動させたり、保管すると、発光色の変化、発光効率の低下、駆動電圧の上昇、発光寿命の短時間化等の悪影響が生じる。これを防ぐためには正孔輸送材料のガラス転移温度（ T_g ）を高くする必要がある。そのために正孔輸送材料の分子内に多くの芳香族基を有する必要がある（例えば、米国特許4,720,432号明細書の芳香族ジアミン誘導体、米国特許5,061,569号明細書の芳香族縮合環ジアミン誘導体、特開平7-126615号公報のテトラフェニルベンジジン化合物）、通常8～12個のベンゼン環を有する構造が好ましく用いられている。

しかしながら、分子内に多くの芳香族基を有すると、これらの正孔輸送材料を用いて薄膜を形成し、有機EL素子を作製する際に結晶化が起りやすく、蒸着に用いるるつぼの出口を塞いだり、結晶化に起因する薄膜の欠陥が発生し、有機EL素子の歩留り低下を招くなどの問題が生じていた。

発明の開示

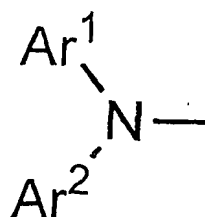
本発明は、前記の課題を解決するためなされたもので、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する新規な芳香族アミン誘導体及びそれを用いた有機EL素子を提供することを目的とする。

本発明者らは、前記目的を達成するために、鋭意研究を重ねた結果、下記一般式（1）で表される非対称な構造を有する新規な芳香族アミン誘導体を有機EL素子用材料として用い、特に正孔輸送材料として用いると、前記の課題を解決することを見出し、本発明を完成するに至った。

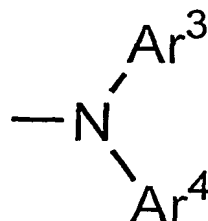
すなわち、下記一般式（1）で表される芳香族アミン誘導体を提供するものである。



（式中、Aは、



で表されるジアリールアミノ基、Bは、



で表されるジアリールアミノ基であって、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基である。ただし、AとBは同一ではない。

Lは、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーレン基からなる連結基、又は、複数の置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーレン基を単結合、酸素原子、硫黄原子、窒素原子又は飽和もしくは不飽和の核炭素数1～20の2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。)

また、本発明は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機EL素子を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

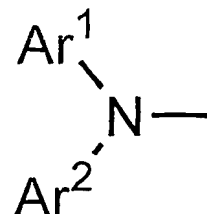
本発明の芳香族アミン誘導体は、下記一般式(1)で表される化合物からなるものである。



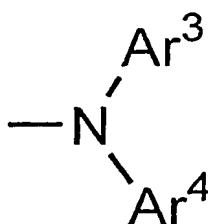
一般式(1)において、AとBは同一ではない。すなわち、本発明の芳香族ア

ミン化合物は、非対称な構造を有している。

一般式(1)において、Aは、



で表されるジアリールアミノ基、Bは、



で表されるジアリールアミノ基であって、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基である。

$\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ のアリール基としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、1-ピロリル基、2-

ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フ

ェナンスロリンー5-イル基、1, 8-フェナンスロリンー6-イル基、1, 8-フェナンスロリンー7-イル基、1, 8-フェナンスロリンー9-イル基、1, 8-フェナンスロリンー10-イル基、1, 9-フェナンスロリンー2-イル基、1, 9-フェナンスロリンー3-イル基、1, 9-フェナンスロリンー4-イル基、1, 9-フェナンスロリンー5-イル基、1, 9-フェナンスロリンー6-イル基、1, 9-フェナンスロリンー7-イル基、1, 9-フェナンスロリンー8-イル基、1, 9-フェナンスロリンー10-イル基、1, 10-フェナンスロリンー2-イル基、1, 10-フェナンスロリンー3-イル基、1, 10-フェナンスロリンー4-イル基、1, 10-フェナンスロリンー5-イル基、2, 9-フェナンスロリンー1-イル基、2, 9-フェナンスロリンー3-イル基、2, 9-フェナンスロリンー4-イル基、2, 9-フェナンスロリンー5-イル基、2, 9-フェナンスロリンー6-イル基、2, 9-フェナンスロリンー7-イル基、2, 9-フェナンスロリンー8-イル基、2, 9-フェナンスロリンー10-イル基、2, 8-フェナンスロリンー1-イル基、2, 8-フェナンスロリンー3-イル基、2, 8-フェナンスロリンー4-イル基、2, 8-フェナンスロリンー5-イル基、2, 8-フェナンスロリンー6-イル基、2, 8-フェナンスロリンー7-イル基、2, 8-フェナンスロリンー9-イル基、2, 8-フェナンスロリンー10-イル基、2, 7-フェナンスロリンー1-イル基、2, 7-フェナンスロリンー3-イル基、2, 7-フェナンスロリンー4-イル基、2, 7-フェナンスロリンー5-イル基、2, 7-フェナンスロリンー6-イル基、2, 7-フェナンスロリンー8-イル基、2, 7-フェナンスロリンー9-イル基、2, 7-フェナンスロリンー10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4

ーオキサゾリル基、5ーオキサゾリル基、2ーオキサジアゾリル基、5ーオキサジアゾリル基、3ーフラザニル基、2ーチエニル基、3ーチエニル基、2ーメチルピロールー1ーイル基、2ーメチルピロールー3ーイル基、2ーメチルピロールー4ーイル基、2ーメチルピロールー5ーイル基、3ーメチルピロールー1ーイル基、3ーメチルピロールー2ーイル基、3ーメチルピロールー4ーイル基、3ーメチルピロールー5ーイル基、2ートープチルピロールー4ーイル基、3ー(2ーフェニルプロピル)ピロールー1ーイル基、2ーメチルー1ーインドリル基、4ーメチルー1ーインドリル基、2ーメチルー3ーインドリル基、4ーメチルー3ーインドリル基、2ートープチル1ーインドリル基、4ートープチル1ーインドリル基、2ートープチル3ーインドリル基、4ートープチル3ーインドリル基等が挙げられる。

これらの中で、好ましくはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ピレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、フルオレニル基である。

一般式(Ⅰ)において、Lは、(Ⅰ)置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーレン基からなる連結基、又は、(Ⅱ)複数の置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーレン基を(Ⅱ-1)単結合、(Ⅱ-2)酸素原子(ーOー)、(Ⅱ-3)硫黄原子(ーSー)、(Ⅱ-4)窒素原子(ーNHー、ーNRー[Rは置換基])又は(Ⅱ-5)飽和もしくは不飽和の核炭素数1～20の2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。

前記(Ⅰ)及び(Ⅱ)における核原子数5～50のアリーレン基としては、例えば、1,4ーフェニレン基、1,2ーフェニレン基、1,3ーフェニレン基、1,4ーナフチレン基、2,6ーナフチレン基、1,5ーナフチレン基、9,10ーアントラニレン基、9,10ーフェナントレニレン基、3,6ーフェナントレニレン基、1,6ーピレニレン基、2,7ーピレニレン基、6,12ークリセニレン基、4,4'ービフェニレン基、3,3'ービフェニレン基、2,2'ー

ビフェニレン基、2, 7-フルオレニレン基、2, 5-チオフェニレン基、2, 5-シローリレン基、2, 5-オキサジアゾーリレン基等が挙げられる。これらの中で、好ましくは、1, 4-フェニレン基、1, 2-フェニレン基、1, 3-フェニレン基、1, 4-ナフチレン基、9, 10-アントラニレン基、6, 12-クリセニレン基、4, 4'-ビフェニレン基、3, 3'-ビフェニレン基、2, 2'-ビフェニレン基、2, 7-フルオレニレン基である。

前記(II-5)における飽和もしくは不飽和の核炭素数1~20の2価の脂肪族炭化水素基としては、直鎖、分岐、環状のいずれであってもよく、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、エチリデン基、シクロヘキシリデン基、アダマンチレン基等が挙げられる。

$Ar^1 \sim Ar^4$ 及びLの置換基としては、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基、置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基で置換されたアミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基等である。

置換もしくは無置換の核原子数5~50のアリール基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフ

ェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、フルオランテニル基、フルオレニル基、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナ

ンスロリンー3-イル基、1, 7-フェナンスロリンー4-イル基、1, 7-フェナンスロリンー5-イル基、1, 7-フェナンスロリンー6-イル基、1, 7-フェナンスロリンー8-イル基、1, 7-フェナンスロリンー9-イル基、1, 7-フェナンスロリンー10-イル基、1, 8-フェナンスロリンー2-イル基、1, 8-フェナンスロリンー3-イル基、1, 8-フェナンスロリンー4-イル基、1, 8-フェナンスロリンー5-イル基、1, 8-フェナンスロリンー6-イル基、1, 8-フェナンスロリンー7-イル基、1, 8-フェナンスロリンー9-イル基、1, 8-フェナンスロリンー10-イル基、1, 9-フェナンスロリンー2-イル基、1, 9-フェナンスロリンー3-イル基、1, 9-フェナンスロリンー4-イル基、1, 9-フェナンスロリンー5-イル基、1, 9-フェナンスロリンー6-イル基、1, 9-フェナンスロリンー7-イル基、1, 9-フェナンスロリンー8-イル基、1, 9-フェナンスロリンー10-イル基、1, 10-フェナンスロリンー2-イル基、1, 10-フェナンスロリンー3-イル基、1, 10-フェナンスロリンー4-イル基、1, 10-フェナンスロリンー5-イル基、2, 9-フェナンスロリンー1-イル基、2, 9-フェナンスロリンー3-イル基、2, 9-フェナンスロリンー4-イル基、2, 9-フェナンスロリンー5-イル基、2, 9-フェナンスロリンー6-イル基、2, 9-フェナンスロリンー7-イル基、2, 9-フェナンスロリンー8-イル基、2, 9-フェナンスロリンー10-イル基、2, 8-フェナンスロリンー1-イル基、2, 8-フェナンスロリンー3-イル基、2, 8-フェナンスロリンー4-イル基、2, 8-フェナンスロリンー5-イル基、2, 8-フェナンスロリンー6-イル基、2, 8-フェナンスロリンー7-イル基、2, 8-フェナンスロリンー9-イル基、2, 8-フェナンスロリンー10-イル基、2, 7-フェナンスロリンー1-イル基、2, 7-フェナンスロリンー3-イル基、2, 7-フェナンスロリンー4-イル基、2, 7-フェナンスロリンー5-イル基、2, 7-フェナンスロリンー6-イル基、2, 7-フェナンスロリンー8-イル基、2, 7-

ーフェナンスロリンー9ーイル基、2，7ーフェナンスロリンー10ーイル基、1ーフェナジニル基、2ーフェナジニル基、1ーフェノチアジニル基、2ーフェノチアジニル基、3ーフェノチアジニル基、4ーフェノチアジニル基、10ーフェノチアジニル基、1ーフェノキサジニル基、2ーフェノキサジニル基、3ーフェノキサジニル基、4ーフェノキサジニル基、10ーフェノキサジニル基、2ーオキサゾリル基、4ーオキサゾリル基、5ーオキサゾリル基、2ーオキサジアゾリル基、5ーオキサジアゾリル基、3ーフラザニル基、2ーチエニル基、3ーチエニル基、2ーメチルピロールー1ーイル基、2ーメチルピロールー3ーイル基、2ーメチルピロールー4ーイル基、2ーメチルピロールー5ーイル基、3ーメチルピロールー1ーイル基、3ーメチルピロールー2ーイル基、3ーメチルピロールー4ーイル基、3ーメチルピロールー5ーイル基、2ートーブチルピロールー4ーイル基、3ー(2ーフェニルプロピル)ピロールー1ーイル基、2ーメチルー1ーインドリル基、4ーメチルー1ーインドリル基、2ーメチルー3ーインドリル基、4ーメチルー3ーインドリル基、2ートーブチル1ーインドリル基、4ートーブチル1ーインドリル基、2ートーブチル3ーインドリル基、4ートーブチル3ーインドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、nーブチル基、sーブチル基、イソブチル基、tーブチル基、nーペンチル基、nーヘキシル基、nーヘプチル基、nーオクチル基、ヒドロキシメチル基、1ーヒドロキシエチル基、2ーヒドロキシエチル基、2ーヒドロキシイソブチル基、1，2ージヒドロキシエチル基、1，3ージヒドロキシイソプロピル基、2，3ージヒドロキシtーブチル基、1，2，3ートリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1ークロロエチル基、2ークロロエチル基、2ークロロイソブチル基、1，2ージクロロエチル基、1，3ージクロロイソプロピル基、2，3ージクロロtーブチル基、1，2，3ートリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1ーブロモエチル基、2ーブロモエチ

ル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシ基は-OYで表される基であり、Yの例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジク

ロローターブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-
ブプロモエチル基、2-ブプロモエチル基、2-ブプロモイソブチル基、1, 2-ジ
ブプロモエチル基、1, 3-ジブプロモイソプロピル基、2, 3-ジブプロモローターブ
チル基、1, 2, 3-トリブプロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチ
ル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル
基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨードローターブチル基、1,
2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-ア
ミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-
ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノローターブチル基、1, 2, 3-トリ
アミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基
、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソ
プロピル基、2, 3-ジシアノローターブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピ
ル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロ
イソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、
2, 3-ジニトロローターブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げ
られる。

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアラルキル基の例としては、ベンジル
基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル
基、2-フェニルイソプロピル基、フェニルローターブチル基、 α -ナフチルメチ
ル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチ
ルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、
1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソ
プロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(
1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-
メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロ
ベンジル基、p-ブプロモベンジル基、m-ブプロモベンジル基、o-ブプロモベンジ

ル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の炭素数5～50のアリールオキシ基は-OY' と表され、Y' の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾ

フラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10

ーフェナンスロリンー2ーイル基、1, 10ーフェナンスロリンー3ーイル基、
1, 10ーフェナンスロリンー4ーイル基、1, 10ーフェナンスロリンー5ー
イル基、2, 9ーフェナンスロリンー1ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー
3ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー4ーイル基、2, 9ーフェナンスロリ
ンー5ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー6ーイル基、2, 9ーフェナンス
ロリンー7ーイル基、2, 9ーフェナンスロリンー8ーイル基、2, 9ーフェナ
ンスロリンー10ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー1ーイル基、2, 8ー
フェナンスロリンー3ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー4ーイル基、2,
8ーフェナンスロリンー5ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー6ーイル基、
2, 8ーフェナンスロリンー7ーイル基、2, 8ーフェナンスロリンー9ーイル
基、2, 8ーフェナンスロリンー10ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー1
ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー3ーイル基、2, 7ーフェナンスロリン
ー4ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー5ーイル基、2, 7ーフェナンスロ
リンー6ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー8ーイル基、2, 7ーフェナン
スロリンー9ーイル基、2, 7ーフェナンスロリンー10ーイル基、1ーフェナ
ジニル基、2ーフェナジニル基、1ーフェノチアジニル基、2ーフェノチアジニ
ル基、3ーフェノチアジニル基、4ーフェノチアジニル基、1ーフェノキサジニ
ル基、2ーフェノキサジニル基、3ーフェノキサジニル基、4ーフェノキサジニ
ル基、2ーオキサゾリル基、4ーオキサゾリル基、5ーオキサゾリル基、2ーオ
キサジアゾリル基、5ーオキサジアゾリル基、3ーフラザニル基、2ーチエニル
基、3ーチエニル基、2ーメチルピロールー1ーイル基、2ーメチルピロールー
3ーイル基、2ーメチルピロールー4ーイル基、2ーメチルピロールー5ーイル
基、3ーメチルピロールー1ーイル基、3ーメチルピロールー2ーイル基、3ー
メチルピロールー4ーイル基、3ーメチルピロールー5ーイル基、2ー ϵ -ブチ
ルピロールー4ーイル基、3-(2ーフェニルプロピル)ピロールー1ーイル基
、2ーメチルー1ーインドリル基、4ーメチルー1ーインドリル基、2ーメチル

ー3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-ト-ブチル1-インドリル基、4-ト-ブチル1-インドリル基、2-ト-ブチル3-インドリル基、4-ト-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の炭素数5～50のアリールチオ基は $-SY''$ と表され、 Y'' の例としてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-ト-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-ト-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基

、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン

ー5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-ト-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-ト-ブチル1-インドリル基、4-ト-ブチル1-インドリル基、2-ト-ブチル3-インドリル基、4-ト-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基は-COOZ

と表され、Zの例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基で置換されたアミノ基は-NPQと表わされ、P、Qの例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-

ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリ

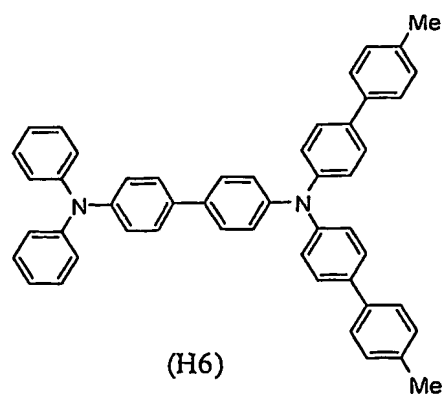
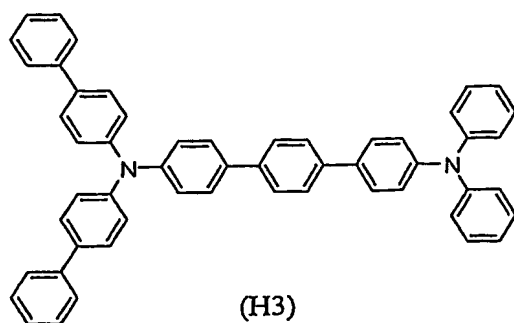
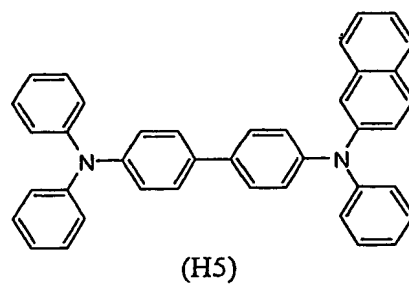
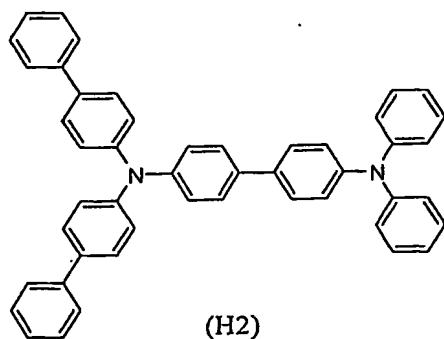
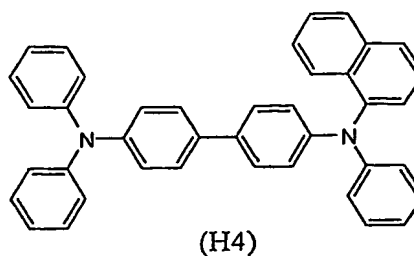
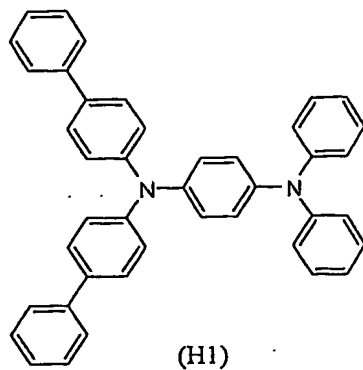
ジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンス

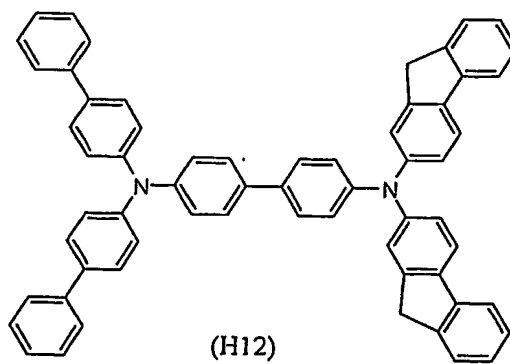
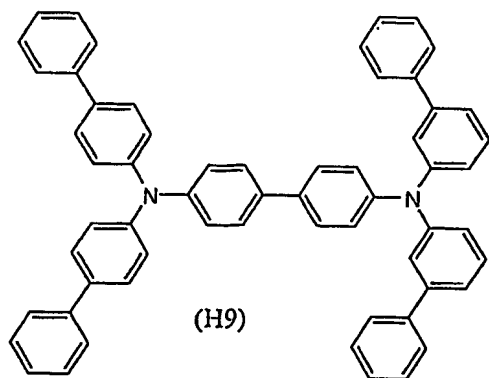
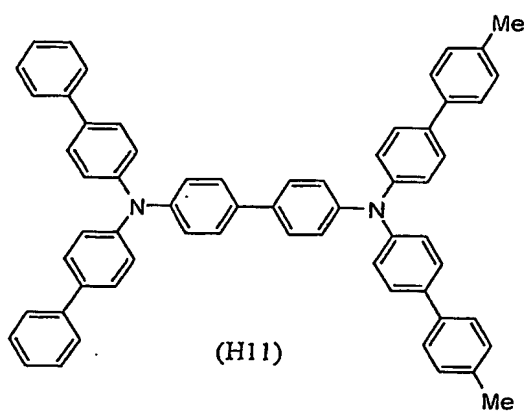
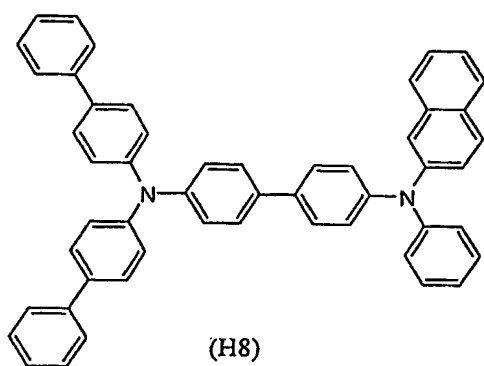
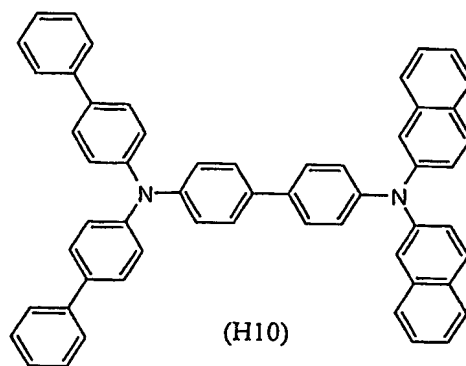
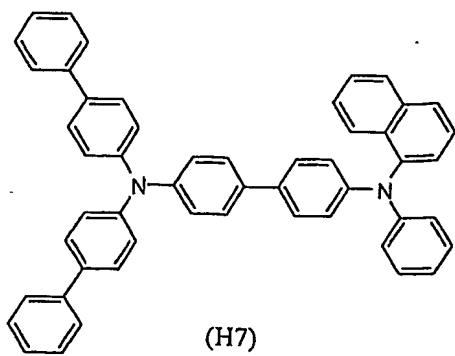
スロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-トープチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-トープチル-1-インドリル基、4-トープチル-1-インドリル基、2-トープチル-3-インドリル基、4-トープチル-3-インドリル基等が挙げられる。P、Qはそれぞれ同一であっても異なっても良い。

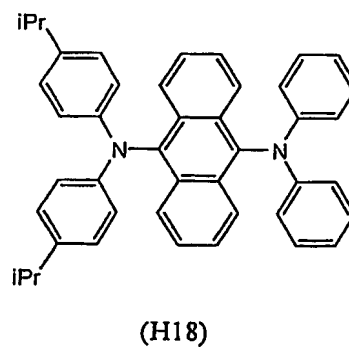
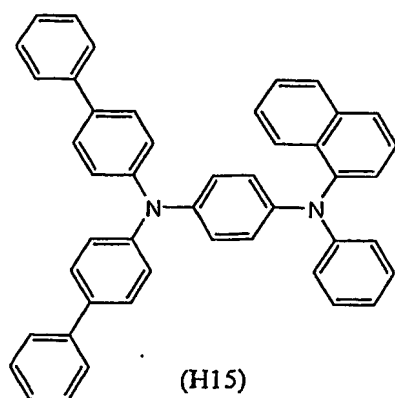
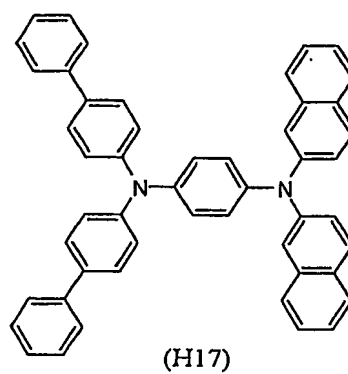
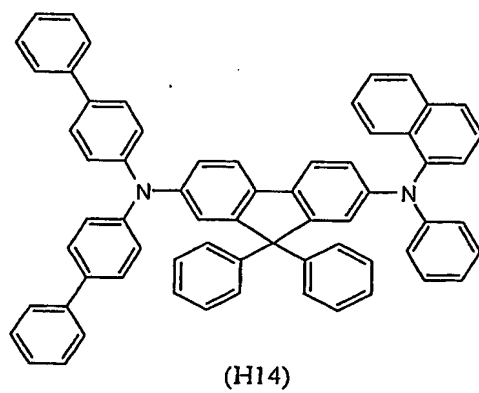
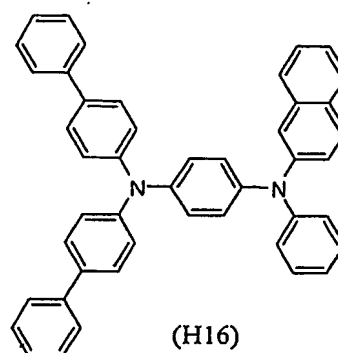
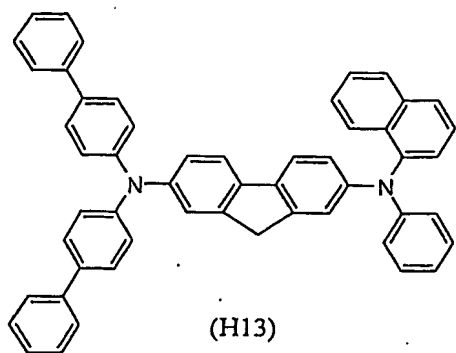
前記置換基は、置換基同士で環を形成していてもよく、環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

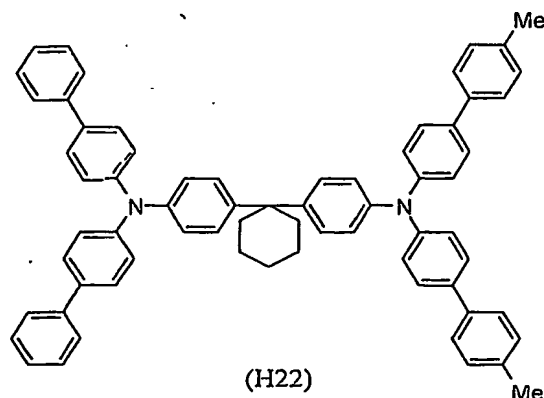
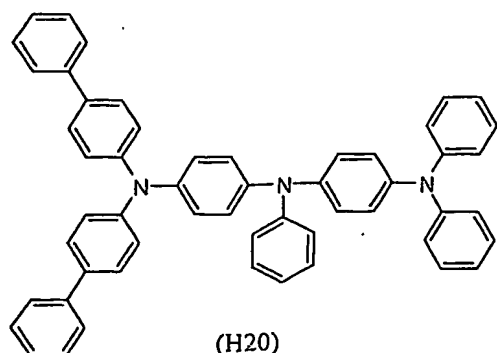
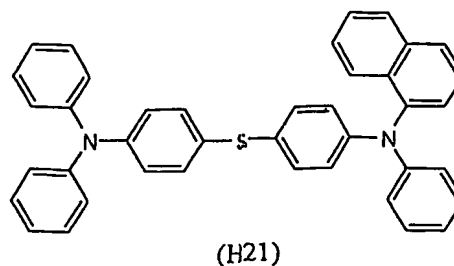
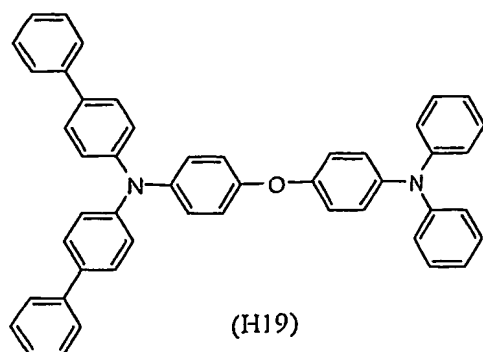
ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

本発明の一般式（１）で表される芳香族アミン誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。なお、Me はメチル基、iPr はイソプロピル基を示す。









次に、本発明の有機EL素子について説明する。

本発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する。

本発明の有機EL素子は、前記有機薄膜層が正孔輸送帯域を有し、該正孔輸送帯域が、本発明の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有すると好ましく、また、前記有機薄膜層が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、本発明の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有するとさらに好ましい。さらに、前記正孔輸送層が、主成分として本発明の芳香族アミン誘導体を含有すると好ましい。

以下、本発明の有機EL素子の素子構成について説明する。

(1) 有機EL素子の構成

本発明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、

- (1) 陽極／発光層／陰極
 - (2) 陽極／正孔注入層／発光層／陰極
 - (3) 陽極／発光層／電子注入層／陰極
 - (4) 陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
 - (5) 陽極／有機半導体層／発光層／陰極
 - (6) 陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極
 - (7) 陽極／有機半導体層／発光層／付着改善層／陰極
 - (8) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
 - (9) 陽極／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
 - (10) 陽極／無機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
 - (11) 陽極／有機半導体層／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極
 - (12) 陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／絶縁層／陰極
 - (13) 陽極／絶縁層／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
- などの構造を挙げることができる。

これらの中で通常(8)の構成が好ましく用いられるが、これらに限定されるものではない。

本発明の芳香族アミン誘導体は、有機EL素子のどの有機薄膜層に用いてもよいが、発光帯域又は正孔輸送帯域に用いることができ、好ましくは正孔輸送帯域、特に好ましくは正孔輸送層に用いることにより、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りが向上する。

本発明の芳香族アミン誘導体を、有機薄膜層に含有させる量としては、30～100モル%が好ましい。

(2) 透光性基板

本発明の有機EL素子は、透光性の基板上に作製する。ここでいう透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、400～700nmの可視領域の光の透

過率が50%以上で平滑な基板が好ましい。

具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等が挙げられる。またポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。

(3) 陽極

本発明の有機EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層又は発光層に注入する機能を有するものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。

このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10 nm~1 μ m、好ましくは10~200 nmの範囲で選択される。

(4) 発光層

有機EL素子の発光層は以下①~③の機能を併せ持つものである。

- ①注入機能；電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能
- ②輸送機能；注入した電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる機能
- ③発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能

ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちら

か一方の電荷を移動することが好ましい。

この発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区別することができる。

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

本発明においては、本発明の目的が損なわれない範囲で、所望により発光層に本発明の芳香族アミン誘導体からなる発光材料以外の他の公知の発光材料を含有させてもよく、また、本発明の芳香族アミン誘導体からなる発光材料を含む発光層に、他の公知の発光材料を含む発光層を積層してもよい。

(5) 正孔注入・輸送層（正孔輸送帯域）

正孔注入・輸送層は発光層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5 eV以下と小さい。このような正孔注入・輸送層としては、より低い電界強度で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に、少なくとも $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$ であれば好ましい。

本発明の芳香族アミン誘導体を正孔輸送帯域に用いる場合、本発明の芳香族アミン誘導体単独で正孔注入、輸送層を形成してもよく、他の材料と混合して用いてもよい。

本発明の芳香族アミン誘導体と混合して正孔注入、輸送層を形成する材料としては、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝

材料において正孔の電荷輸送材料として慣用されているものや、有機EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

具体例としては、トリアゾール誘導体（米国特許3, 112, 197号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許3, 189, 447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ポリアリーラルカン誘導体（米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 820, 989号明細書、同第3, 542, 544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体（米国特許第3, 180, 729号明細書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3, 615, 404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリーラルアミン誘導体（米国特許第3, 567, 450号明細書、同第3, 180, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3, 526, 501号明細

書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3, 257, 203号明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同第61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93455号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4, 950, 950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。

正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

また、米国特許第5, 061, 569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4, 4'-ビス(N-(1-ナフチル)-N-フェ

ニルアミノ) ビフェニル (以下NPDと略記する)、また特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4"-トリス(N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン (以下MTDATAと略記する) 等を挙げることができる。

さらに、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリデン系化合物の他、p型Si、p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。

正孔注入・輸送層は本発明の芳香族アミン誘導体を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入・輸送層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5 nm~5 μ mである。この正孔注入・輸送層は、正孔輸送帯域に本発明の芳香族アミン誘導体を含有していれば、上述した材料の一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよく、前記正孔注入・輸送層とは別種の化合物からなる正孔注入・輸送層を積層したものであってもよい。

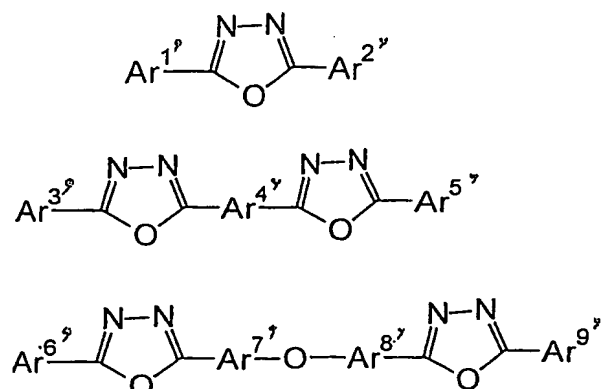
また、発光層への正孔注入又は電子注入を助ける層として有機半導体層を設けてもよく、 10^{-10} S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフエンオリゴマーや特開平8-193191号公報に開示してある含アリールアミンオリゴマー等の導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマー等の導電性デンドリマー等を用いることができる。

(6) 電子注入層

電子注入層・輸送層は、発光層への電子の注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、電子移動度が大きく、また、付着改善層は、この電子注入層の中で特に陰極との付着性がよい材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体が好適である。

この 8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシン（一般に 8-キノリノール又は 8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられ、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）を電子注入材料として用いることができる。

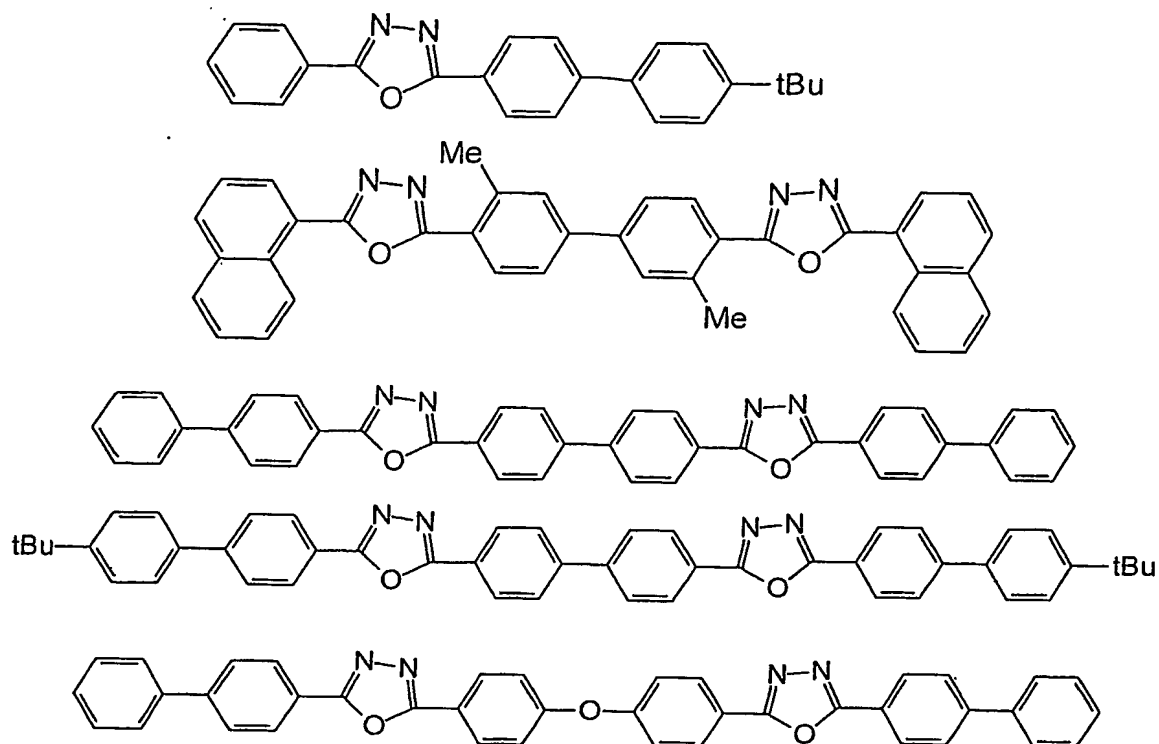
また、オキサジアゾール誘導体としては、以下の一般式で表される電子伝達化合物が挙げられる。



（式中 Ar^{1'}、Ar^{2'}、Ar^{3'}、Ar^{5'}、Ar^{6'}、Ar^{9'} はそれぞれ置換もしくは無置換のアリール基を示し、それぞれ互いに同一であっても異なってもよい。また、Ar^{4'}、Ar^{7'}、Ar^{8'} は置換もしくは無置換のアリーレン基を示し、それぞれ同一であっても異なってもよい）

ここでアリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基が挙げられ、アリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 1～10 のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この電子伝達化合物は薄膜形成性のものが好ましい。

この電子伝達性化合物の具体例としては下記のことを挙げるができる。



また、本発明の有機EL素子は、電子を輸送する領域又は陰極と有機薄膜層の界面領域に、還元性ドーパントを含有していてもよい。ここで、還元性ドーパントとは、電子輸送性化合物を還元ができる物質と定義される。したがって、一定の還元性を有するものであれば、様々なものが用いられ、例えば、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物又は希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、希土類金属の有機錯体からなる群から選択される少なくとも一つの物質を好適に使用することができる。

好ましい還元性ドーパントの具体例としては、Na（仕事関数：2.36 eV）、K（仕事関数：2.28 eV）、Rb（仕事関数：2.16 eV）及びCs（仕事関数：1.95 eV）からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、Ca（仕事関数：2.9 eV）、Sr（仕事関数：2.0～2.5 eV）

V)、及びBa (仕事関数: 2.52 eV) からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられる仕事関数が2.9 eV以下のものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCs からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、Rb又はCsであり、最も好ましいのはCsである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。また、仕事関数が2.9 eV以下の還元性ドーパントとして、これら2種以上のアルカリ金属の組み合わせも好ましく、特に、Csを含んだ組み合わせ、例えば、CsとNa、CsとK、CsとRb又はCsとNaとKとの組み合わせであることが好ましい。Csを組み合わせることで含むことにより、還元能力を効率的に発揮することができ、電子注入域への添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

本発明の有機EL素子は、陰極と有機層の間に絶縁体や半導体で構成される電子注入層をさらに設けてもよい。これにより、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができるため好ましい。具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び NaO が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 といった

フッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

また、電子輸送層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物又は酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

(7) 陰極

陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入するため、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム・カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。

この陰極はこれらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。

ここで発光層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。

また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~1 μ m、好ましくは50~200 nmである。

(8) 絶縁層

有機EL素子は超薄膜に電界を印可するために、リークやショートによる画素欠陥が生じやすい。これを防止するために、一対の電極間に絶縁性の薄膜層を挿

入することが好ましい。

絶縁層に用いられる材料としては例えば酸化アルミニウム、弗化リチウム、酸化リチウム、弗化セシウム、酸化セシウム、酸化マグネシウム、弗化マグネシウム、酸化カルシウム、弗化カルシウム、窒化アルミニウム、酸化チタン、酸化珪素、酸化ゲルマニウム、窒化珪素、窒化ホウ素、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム等が挙げられ、これらの混合物や積層物を用いてもよい。

(9) 有機EL素子の製造方法

以上例示した材料及び形成方法により陽極、発光層、必要に応じて正孔注入・輸送層、及び必要に応じて電子注入・輸送層を形成し、さらに陰極を形成することにより有機EL素子を作製することができる。また陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

以下、透光性基板上に陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。

まず、適当な透光性基板上に陽極材料からなる薄膜を $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して陽極を作製する。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物（正孔注入層の材料）、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度 $50\sim 450^{\circ}\text{C}$ 、真空度 $10^{-7}\sim 10^{-3}\text{torr}$ 、蒸着速度 $0.01\sim 50\text{nm/秒}$ 、基板温度 $-50\sim 300^{\circ}\text{C}$ 、膜厚 $5\text{nm}\sim 5\mu\text{m}$ の範囲で適宜選択することが好ましい。

次に、正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて真空蒸着法、スパッタリング、スピンコート法、キャスト法等の方法によ

り有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じような条件範囲の中から選択することができる。

次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は正孔注入層、発光層と同様の条件範囲から選択することができる。

本発明の芳香族アミン誘導体は、発光帯域や正孔輸送帯域のいずれの層に含有させるかによって異なるが、真空蒸着法を用いる場合は他の材料との共蒸着をすることができる。また、スピコート法を用いる場合は、他の材料と混合することによって含有させることができる。

最後に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。

陰極は金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

この有機EL素子の作製は一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる、前記一般式(1)で示される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必

要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1 μ mの範囲が好ましい。

なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、5～40Vの電圧を印加すると発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には陽極が+、陰極が-の極性になった時のみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。

次に、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例1 (N, N-ジフェニル-1-アミノ-N, N-ジ-ピフェニル-4-アミノベンゼン (H1) の合成)

(1) ジ-4-ピフェニルアミンの合成

100ミリリットルの三つ口フラスコに4-ブロモピフェニル10.0g (東京化成社品)、 t -ブトキシナトリウム4.32g (和光純薬社製)、酢酸パラジウム42mg (和光純薬社製)を入れた。さらに攪拌子を入れ、フラスコの両側にラバーキャップをセットし、中央の口に還流用蛇管、その上に三方コックとアルゴンガスを封入した風船をセットし、系内を真空ポンプを用いて3回、風船内のアルゴンガスで置換した。

次に、脱水トルエン60ミリリットル (和光純薬社製)、ベンジルアミン2.04ミリリットル (東京化成社製)、トリ- n -ブチルホスフィン 169 μ リットル (アルドリッチ社製、2.22mol/リットルトルエン溶液) をシリンジでラバーセプタムを通して加え、5分間室温で攪拌した。

次にフラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。7時間後、オイルバスからフラスコを外し反応を終了させ、アルゴン雰囲気下、12時間放置した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタン 300ミリリットルを加えて沈殿

物を溶解させ、飽和食塩水60ミリリットルで洗浄後、有機層を無水炭酸カリウムで乾燥した。炭酸カリウムを濾別して得られた有機層の溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン 200ミリリットル、エタノール40ミリリットルを加え、乾燥管を付けて80℃に加熱し、残渣を完全に溶解した。その後12時間放置し、室温まで除冷することにより再結晶化させた。

析出した結晶を濾別し、60℃で真空乾燥することにより6.73g のN, N-ジー(4-ビフェニル)-ベンジルアミンを得た。

300ミリリットルの一口フラスコに、1.35gのN, N-ジー(4-ビフェニル)-ベンジルアミン、パラジウム-活性炭素135mg (和光純薬社製、パラジウム含有量10重量%)を入れ、クロロホルム 100ミリリットル、エタノール20ミリリットルを加えて溶解した。

次に、フラスコに攪拌子を入れた後、水素ガス2リットルが充填された風船を装着した三方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ系内を水素ガスで10回置換した。減った水素ガスを新たに充填し、水素ガスの容積を再び2リットルにした後、室温で激しく溶液を攪拌した。30時間攪拌後、ジクロロメタン 100ミリリットルを加え、触媒を濾別した。

次に、得られた溶液を分液ロートに移し、炭酸水素ナトリウム飽和水溶液50ミリリットルで洗浄後、有機層を分別し、無水炭酸カリウムで乾燥した。濾過後、溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン50ミリリットルを加え、再結晶化させた。析出した結晶を濾別し、50℃で真空乾燥することにより0.99g のジー4-ビフェニルアミンを得た。

(2) 4-ブロモ-N, N-ジービフェニルアニリンの合成

アルゴン気流下、上記(1)で得られたジー4-ビフェニルアミン10g、1, 4-ジブロモベンゼン7.3g (東京化成社製)、ト-ブトキシナトリウム3g (広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II) 0.5g (東京化成社製)及びキシレン 500ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した

。冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、8.1gの4-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニルアニリンが得られた。

(3) 化合物(H1)の合成

アルゴン気流下、上記(2)で得られた4-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニルアニリン2g、N, N-ジフェニルアミン1g(東京化成社製)、t-ブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II)0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.6gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)分析により、 $C_{42}H_{32}N_2 = 564$ に対し、 $m/z = 564$ の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニル-1-アミノ-N, N-ジ-ビフェニル-4-アミノベンゼン(H1)と同定した。

実施例2(N, N-ジフェニル-4-アミノ-N', N'-ジ-ビフェニル-4'-アミノ-1, 1'-ビフェニル(H2)の合成)

(1) 4'-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニル-4-アミノ-1, 1'-ビフェニルの合成

アルゴン気流下、実施例1の(1)で得られたジ-4-ビフェニルアミン10g(東京化成)、4, 4'-ジブロモビフェニル9.7g(東京化成社製)、t-ブトキシナトリウム3g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化

パラジウム (II) 0.5g (東京化成社製) 及びキシレン 500ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.1gの4'-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニル-4-アミノ-1, 1'-ビフェニルが得られた。

(2) 化合物 (H2) の合成

アルゴン気流下、上記(1)で得られた4'-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニル-4-アミノ-1, 1'-ビフェニル2.3g、N, N-ジフェニルアミン1g (東京化成社製)、t-ブトキシナトリウム0.5g (広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム (II) 0.1g (東京化成社製) 及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.6gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、F D-M S分析により、 $C_{48}H_{36}N_2 = 640$ に対し、 $m/z = 640$ の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニル-4-アミノ-N', N'-ジ-ビフェニル-4'-アミノ-1, 1'-ビフェニル (H2) と同定した。

実施例 3 (N, N-ジフェニル-4-アミノ-N'', N''-ジ-ビフェニル-4''-アミノ-p-ターフェニル (H3) の合成)

(1) 4''-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニル-4-アミノ-p-ターフェニルの合成

アルゴン気流下、ジ-4-ビフェニルアミン10g (東京化成)、4, 4''-

ジブロモ-*p*-ターフェニル12.1g（ランカスター社製）、*t*-ブトキシナトリウム3g（広島和光社製）、ビス（トリフェニルホスフィン）塩化パラジウム（II）0.5g（東京化成社製）及びキシレン 500ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水1000ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、9.4gの4''-ブロモ-N, N-ジービフェニル-4-アミノ-*p*-ターフェニルが得られた。

（2）化合物（H3）

アルゴン気流下、上記（1）で得られた4''-ブロモ-N, N-ジービフェニル-4-アミノ-*p*-ターフェニル2.6g、N, N-ジフェニルアミン1g（東京化成社製）、*t*-ブトキシナトリウム0.5g（広島和光社製）、ビス（トリフェニルホスフィン）塩化パラジウム（II）0.1g（東京化成社製）及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.7gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{54}H_{40}N_2 = 716$ に対し、 $m/z = 716$ の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニル-4-アミノ-N'', N''-ジービフェニル-4''-アミノ-*p*-ターフェニル（H3）と同定した。

実施例4（N, N, N'-トリフェニル-4-アミノ-N'-(1-ナフチル)アミノ-1, 1'-ビフェニル（H4）の合成）

アルゴン気流下、実施例2の（1）で得られた4'-ブロモ-N, N-ジービ

フェニルル-4-アミノ-1, 1'-ビフェニル2.3g、N-フェニル1-ナフチルアミン1g（東京化成社製）、*t*-ブトキシナトリウム0.5g（広島和光社製）、ビス（トリフェニルホスフィン）塩化パラジウム（II）0.1g（東京化成社製）及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、2.0gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{52}H_{38}N_2 = 690$ に対し、 $m/z = 690$ の主ピークが得られたので、N, N, N'-トリフェニル-4-アミノ-N'-(1-ナフチル)アミノ-1, 1'-ビフェニル（H4）と同定した。

実施例 5（N, N, N'-トリフェニル-4-アミノ-N'-(2-ナフチル)アミノ-1, 1'-ビフェニル（H5）の合成）

アルゴン気流下、実施例 2 の（1）で得られた4'-ブロモ-N, N-ジ-ビフェニルル-4-アミノ-1, 1'-ビフェニル2.3g、N-フェニル2-ナフチルアミン1g（東京化成社製）、*t*-ブトキシナトリウム0.5g（広島和光社製）、ビス（トリフェニルホスフィン）塩化パラジウム（II）0.1g（東京化成社製）及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、1.9gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、FD-MS分析により、 $C_{52}H_{38}N_2 = 690$ に対し、 $m/z = 690$ の主ピークが得られたので、N, N, N'-トリフェニル-4-アミノ-N'-(2-ナフチル)アミノ-1, 1'-ビフェニル（H5）と同定し

た。

実施例 6 (N, N-ジフェニル-4-アミノ-N', N'-ジ-(4'-メチル-4-ビフェニル)-4'-アミノ-1, 1'-ビフェニル (H 6) の合成)

(1) 4-ヨード-4'-メチルビフェニルの合成

4-メチルビフェニル75g (東京化成社製) とオルト過ヨウ素酸19.2g (和光純薬社製) とヨウ素64.3g (和光純薬社製) と酢酸 230ミリリットルと濃硫酸 7.6ミリリットルを入れ、70℃で2時間反応した。

反応後、室温まで冷却し、メタノール 850ミリリットルに攪拌下注入し、析出結晶を濾取し、得られた結晶をアセトニトリル 2.1リットルにて再結晶し、73g の4-ヨード-4'-メチルビフェニルを得た。

(2) ジ-(4'-メチル-4-ビフェニル) アミンの合成

100ミリリットルの三つ口フラスコに、上記(1)で得られた4-ヨード-4'-メチルビフェニル10.0g、*t*-ブトキシナトリウム4.32g (和光純薬社製)、酢酸パラジウム42mg (和光純薬社製) を入れた。さらに攪拌子を入れ、フラスコの両側にラバーキャップをセットし、中央の口に還流用蛇管、その上に三方コックとアルゴンガスを封入した風船をセットし、系内を真空ポンプを用いて3回、風船内のアルゴンガスで置換した。

次に、脱水トルエン60ミリリットル (和光純薬社製)、ベンジルアミン2.04ミリリットル (東京化成社製)、トリ-*n*-ブチルホスフィン 169 μ リットル (アルドリッチ社製、2.22mol/リットルトルエン溶液) をシリンジでラバーセプタムを通して加え、5分間室温で攪拌した。

次にフラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。7時間後、オイルバスからフラスコを外し反応を終了させ、アルゴン雰囲気下、12時間放置した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジクロロメタン 300ミリリットルを加えて沈殿物を溶解させ、飽和食塩水60ミリリットルで洗浄後、有機層を無水炭酸カリウム

で乾燥した。炭酸カリウムを濾別して得られた有機層の溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン 200ミリリットル、エタノール40ミリリットルを加え、乾燥管を付けて80℃に加熱し、残渣を完全に溶解した。その後12時間放置し、室温まで除冷することにより再結晶化させた。

析出した結晶を濾別し、60℃で真空乾燥することにより6.12gのN, N-ジー(4'-メチルー4-ビフェニル)-ベンジルアミンを得た。

300ミリリットルの一口フラスコに、1.35gのN, N-ジー(4'-メチルー4-ビフェニル)-ベンジルアミン、パラジウム-活性炭素135mg(和光純薬社製、パラジウム含有量10重量%)を入れ、クロロホルム 100ミリリットル、エタノール20ミリリットルを加えて溶解した。

次に、フラスコに攪拌子を入れた後、水素ガス2リットルが充填された風船を装着した三方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ系内を水素ガスで10回置換した。減った水素ガスを新たに充填し、水素ガスの容積を再び2リットルにした後、室温で激しく溶液を攪拌した。30時間攪拌後、ジクロロメタン 100ミリリットルを加え、触媒を濾別した。

次に、得られた溶液を分液ロートに移し、炭酸水素ナトリウム飽和水溶液50ミリリットルで洗浄後、有機層を分別し、無水炭酸カリウムで乾燥した。濾過後、溶媒を留去し、得られた残渣にトルエン50ミリリットルを加え、再結晶化させた。析出した結晶を濾別し、50℃で真空乾燥することにより0.83gのジー(4'-メチルー4-ビフェニル)アミンを得た。

(3) 化合物(H6)の合成

アルゴン気流下、実施例2の(1)で得られた4'-ブロモ-N, N-ジービフェニル-4-アミノ-1, 1'-ビフェニル2.3g、上記(2)で得られたジー(4'-メチルー4-ビフェニル)アミン1.8g、ト-ブトキシナトリウム0.5g(広島和光社製)、ビス(トリフェニルホスフィン)塩化パラジウム(II) 0.1g(東京化成社製)及びキシレン 300ミリリットルを入れ、130℃にて24時間反

応した。

冷却後、水 500ミリリットルを加え、混合物をセライト濾過し、濾液をトルエンで抽出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた。これを減圧下で濃縮し、得られた粗生成物をカラム精製し、トルエンで再結晶し、それを濾取した後、乾燥したところ、2.3gの淡黄色粉末が得られた。

得られた粉末について、F D-M S分析により、 $C_{62}H_{48}N_2 = 820$ に対し、 $m/z = 821$ の主ピークが得られたので、N, N-ジフェニル-4-アミノ-N', N'-ジ-(4'-メチル-4-ビフェニル)-4'-アミノ-1, 1'-ビフェニル(H 6) と同定した。

実施例 7

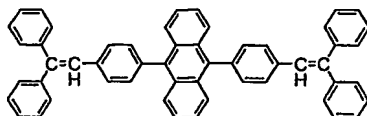
25mm×75mm×1.1mm 厚の I T O 透明電極付きガラス基板（ジオマテック社製）をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を 5 分間行なった後、U V オゾン洗浄を 30 分間行なった。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず透明電極ラインが形成されている側の面上に前記透明電極を覆うようにして膜厚 60nm の N, N'-ビス(N, N'-ジフェニル-4-アミノフェニル)-N, N'-ジフェニル-4, 4'-ジアミノ-1, 1'-ビフェニル膜(T P D 2 3 2 膜)を成膜した。この T P D 2 3 2 膜は、正孔注入層として機能する。この T P D 2 3 2 膜上に正孔輸送材料として膜厚 20nm の上記化合物(H 1)層を成膜した。この膜は正孔輸送層として機能する。さらに、膜厚 40nm の下記化合物 E M 1 を蒸着し成膜した。同時に発光分子として、下記のスチリル基を有するアミン化合物 D 1 を、E M 1 : D 1 の重量比が 4 0 : 2 になるように蒸着した。この膜は、発光層として機能する。この膜上に膜厚 10nm の下記 A l q 膜を成膜した。これは、電子注入層として機能する。この後、還元性ドーパントである L i (L i 源：サエスゲッター社製)と A l q を二元蒸着させ、電子注入層(又は陰極)として A l q : L i 膜(膜厚 10nm)を形成した。この A l q : L i 膜上に金属 A

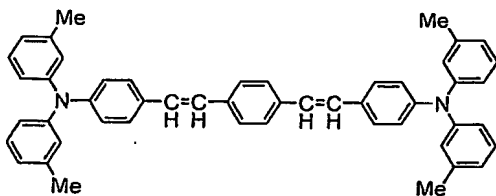
1 を蒸着させ金属陰極を形成し有機 EL 素子を形成した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

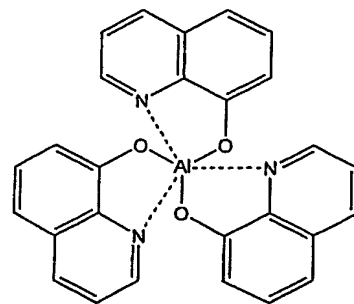
なお、化合物 (H 1) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。



EM1



D 1



Alq

実施例 8

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに化合物 (H 2) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、化合物 (H 2) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

実施例 9

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに化合物 (H 3) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果

を表 1 に示す。

なお、化合物 (H 3) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

実施例 1 0

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに化合物 (H 4) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、化合物 (H 4) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

実施例 1 1

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに化合物 (H 5) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、化合物 (H 5) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

実施例 1 2

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに化合物 (H 6) を用いた以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果を表 1 に示す。

なお、化合物 (H 6) はアモルファス性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部を結晶が塞ぐことはなかった。

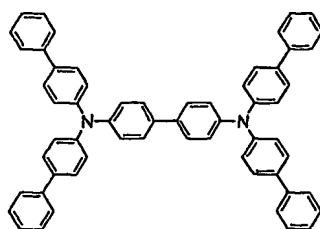
比較例 1

実施例 7 において、化合物 (H 1) の代わりに下記 N, N, N', N' - テトラ

(4-ビフェニル)ージアミノビフェニレン(TBDB)を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた素子について電流密度 1 mA/cm^2 における発光効率を測定し、その結果を表1に示す。

なお、TBDBは結晶性が高く、蒸着時に蒸着源の開口部で結晶化し、連続的に成膜することができなかった。



TBDB

表 1

	正孔輸送材料	発光効率(cd/A)	発光色
実施例7	H1	11.0	青
実施例8	H2	12.0	青
実施例9	H3	11.2	青
実施例10	H4	12.2	青
実施例11	H5	12.1	青
実施例12	H6	12.3	青
比較例1	TBDB	11.5	青

以上の結果から判るように、本発明の芳香族アミン誘導体を有機EL素子の正孔輸送材料に用いた場合、従来用いられている材料と同等の発光効率で発光させることが可能な上、アモルファス性が高いことから、成膜時に蒸着源の開口部を塞ぐことがなく、連続的に素子を成膜することができるため、有機EL素子の製造歩留り向上に極めて有効であった。

産業上の利用可能性

以上、詳細に説明したように、本発明の芳香族アミン誘導体及びそれを用いた

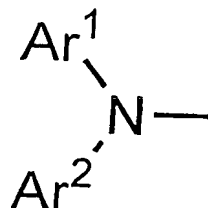
有機EL素子は、高い発光効率を維持しつつ、分子が結晶化しにくく、有機EL素子を製造する際の歩留りを向上させることができる。

請求の範囲

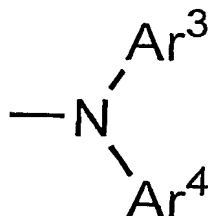
1. 下記一般式(1)で表される芳香族アミン誘導体。



(式中、Aは、



で表されるジアリールアミノ基、Bは、



で表されるジアリールアミノ基であって、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリール基である。ただし、AとBは同一ではない。

Lは、置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーレン基からなる連結基、又は、複数の置換もしくは無置換の核原子数5～50のアリーレン基を単結合、酸素原子、硫黄原子、窒素原子又は飽和もしくは不飽和の核炭素数1～20の2価の脂肪族炭化水素基で結合した連結基である。)

2. 陰極と陽極間に少なくとも発光層を含む一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1に記載の芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 前記有機薄膜層が正孔輸送帯域を有し、該正孔輸送帯域が、前記芳香族ア

ミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

4. 前記有機薄膜層が正孔輸送層を有し、該正孔輸送層が、前記芳香族アミン誘導体を単独もしくは混合物の成分として含有する請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

5. 前記正孔輸送層が、主成分として前記芳香族アミン誘導体を含有する請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. 前記有機薄膜層が、前記芳香族アミン誘導体を 30～100モル%含有する請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/000119

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C07C211/54, 211/58, H05B33/14, 33/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C07C211/54, 211/58, H05B33/14, 33/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KOENE, Bryan E. et al., Unsymmetrical Triaryldiamines as Thermally Stable Hole Transporting Layers for Organic Light-Emitting Devices, Chemistry of Materials, 1998, 10(8), 2235-2250, Tables 1, 2	1-6
X	O'BRIEN, Diarmuid F. et al., Hole transporting materials with high glass transition temperatures for use in organic light-emitting devices, Advanced Materials, 1998, 10(14), 1108-1112, Fig. 1	1-6
X	TOKITO, Shizuo et al., Thermal stability of electroluminescent devices fabricated using novel charge-transporting materials, Polymer Preprints, 1997, 38(1), 388-389, Fig. 1	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 02 April, 2004 (02.04.04)	Date of mailing of the international search report 20 April, 2004 (20.04.04)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/000119

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1195422 A1 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.), 10 April, 2002 (10.04.02), & JP 2002-56981 A & WO 01/46335 A1 & US 2003/82400 A1 Full description	1-6
X	JP 2000-56490 A (Canon Inc.), 25 February, 2000 (25.02.00), Tables 1, 2 (Family: none)	1

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C07C211/54, 211/58, H05B33/14, 33/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C07C211/54, 211/58, H05B33/14, 33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	KOENE, Bryan E. et al., Unsymmetrical Triaryldiamines as Thermally Stable Hole Transporting Layers for Organic Light-Emitting Devices, Chemistry of Materials, 1998, 10(8), 2235-2250 Table 1, 2	1-6

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02.04.2004

国際調査報告の発送日

20.4.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

本堂 裕司

4H

9049

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	O'BRIEN, Diarmuid F. et al., Hole transporting materials with high glass transition temperatures for use in organic light-emitting devices, Advanced Materials, 1998, 10(14), 1108-1112 Fig. 1	1-6
X	TOKITO, Shizuo et al., Thermal stability of electroluminescent devices fabricated using novel charge-transporting materials, Polymer Preprints, 1997, 38(1), 388-389 Figure 1	1-6
X	EP 1195422 A1 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) 2002.04.10 & JP 2002-56981 A & WO 01/46335 A1 & US 2003/82400 A1 明細書全体	1-6
X	JP 2000-56490 A (キャノン株式会社) 2000.02.25 (ファミリーなし) 【表1】、【表2】	1